

План работы на 2018 г.

На 2018 год запланирован обширный план работ. В основном он состоит из задач, перечисленных в заявке на продление гранта РФФИ на 2017 и 2018 гг. Плюс имеются важные дополнения. Эти дополнения связаны с успешным развитием исследований на этапе 2017 г. и новыми научными связями, которые сформировались за последние год-два (MESA+ University of Twente и Lasercenter Munich, University of Applied Sciences)

(1) 3D эффекты, плавление/испарение/рекристаллизация, произвольная длительность лазерного импульса

Слова о трёхмерном пространстве означают, что мы будем учитывать конечный размер пятна нагрева. Сказанное о геометрии поясняет рис. 1. Лазерный пучок $F(r)$ действует на мишень. Пусть пучок имеет максимум интенсивности на оптической оси (например, гауссов пучок). Глубина H (по нормали к границе мишени), на которую распространилось влияние лазерного воздействия, сравнивается с радиусом R пучка. Если глубина H мала по сравнению с радиусом R , то задачу можно кардинально упростить, перейдя от 3D к 1D пространству. Но если $H \sim R$ или $H > R$, то приходится решать полную, трудную 3D задачу.

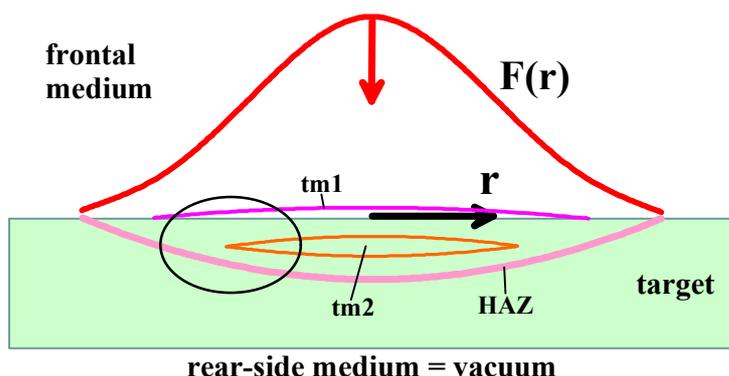


Рис. 1. Показано воздействие пространственно ограниченного лазерного импульса $F(r)$ на поверхность мишени; $F(r)$ – локальное значение флюенса, r – цилиндрический радиус (отсчитывается от оси лазерного пучка), $tm1$ – смещение контакта между веществом мишени «target» и средой «frontal medium» над мишенью. Эта среда называется фронтальной, п.ч. через нее проходит лазерный пучок до поглощения в мишени. Соответственно имеются фронтальная и тыльная («rear-side») стороны мишени.

Кроме того, в окрестности порога задача всегда является трехмерной. Эта окрестность выделена кружком на рис. 1. Например, рассмотрим ультракороткое воздействие с амплитудой, превышающей порог абляции; (длительность ультракороткого импульса τ_L мала по сравнению с акустическим масштабом времени d/c , где d – это глубина слоя прогрева: Heat Affected Zone, HAZ, c – скорость звука). Тогда на некоторой глубине под поверхностью мишени начинается нуклеация. В результате формируется полость tm_2 , наполненная двухфазной смесью, см. рис. 1. В боковом направлении полость оканчивается на радиусе r^* . Окончание r^* находится там, где флюенс $F(r^*)$ снижается до порогового значения F_{thr} .

Примеры 3D формирований приведены на рис. 2. Подчеркнем, это две принципиально разные ситуации, хотя на вид морфология аналогична. В обоих случаях использовалась металлическая пленка, напыленная на диэлектрическую подложку. Слева пленка тонкая – в том смысле, что толщина слоя прогрева HAZ в материале пленки больше, чем толщина пленки. Тогда пленка прогревается однородно по нормали вдоль своей толщины. Причем в случае на рис. 2 слева импульс ультракороткий – нагрев завершается до того, как звук пробежит пленку по ее толщине.

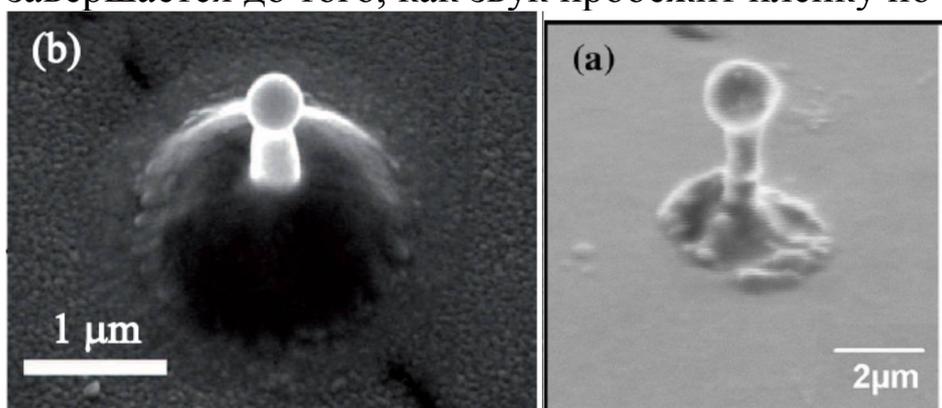


Рис. 2. Формирования

в виде застывшего купола и струи с каплей на ней. Левая фотография взята из работы Данилова и др. *Перераспределение материала при фемтосекундной лазерной абляции тонкой серебряной пленки*, Письма ЖЭТФ (2016) т. **104**(11), с. 780 [1], а правая из: Qingfeng Li et al., *Laser-induced nano-jetting behaviors of liquid metals*, Applied Physics A (October 2017) v. **123**(11), p.718 [2]. Два фото выглядят похожими внешне и по пространственному масштабу. Между тем они созданы при качественно отличных условиях, скажем длительность импульса в случае слева 0.2 пс, а справа – 50 пс – разница в 250 раз! Толщина пленки слева равна 100 нм, а справа – 620 нм. Процессы, приводящие к формированию слева, полностью выяснены в цикле работ, выполненных на предыдущих этапах работы по гранту РФФ 14-19-01599. А вот что происходит справа – предстоит выяснить на заключительном этапе исследований по гранту.

Итак, слева на рис. 2 пленка тонкая/импульс ультракороткий. Тогда как справа на рис. 2, во-первых, плёнка толстая (в разы толще, чем HAZ на рис. 1), и, во-вторых, импульс длинный – его длительность больше звукового масштаба времени d/c , где d – толщина HAZ . Если в левом случае неважно, с какой стороны происходит нагрев пленки (со стороны материальной прозрачной подложки, т.е. нагрев снизу на рис. 1, или со стороны вакуума, т.е. нагрев сверху на рис. 1), то в правом случае это существенное обстоятельство. В левом случае имеет место однородный нагрев пленки по ее толщине, поэтому направление нагрева не играет роли. Тонкая пленка (левый случай) отлетает от подложки под действием давления, действующего на контакте между пленкой и подложкой.

Одно из основных направлений работ по гранту РФФ 14-19-01599 связано с 3D уединенными формованиями на тонких пленках, остающимися после ультракороткого удара (это левый случай на рис. 2). В результате наших исследований по гранту этот вопрос решен, см. статьи и отчеты за 2015 и 2016-й годы. Отметим, что до нашего цикла работ решения этой важной проблемы не было. Хотя первые экспериментальные фото вида, показанного слева на рис. 2, появились в 2003, 2004 гг.; работы Korte F., Koch J., and Chichkov V.N. *Appl. Phys. A*, **79**, 879 (2004); Y. Nakata, T. Okada, M. Maeda, *Jpn. J. Appl. Phys.* 42 (2003) L1452. В предыдущих теоретических и численных работах не удавалось получить картину с джетом на вершине купола.

На этапе 2018 г. исполнения гранта, наработанные на предыдущих этапах подходы, будут применены к более сложному случаю, к толстым пленкам. Будут рассмотрены как ультракороткий импульс, так и длинные импульсы. Сначала мы рассмотрим проблему с формированием, показанным на рис. 2 справа. Затем перейдем к еще более сложной проблеме с толстой пленкой на подложке, освещаемой со стороны вакуума.

Наши подходы состоят в применении комбинированной методики. Сначала решаются одномерные задачи с полной двухтемпературной физикой, гидродинамикой и уравнениями состояния. Учитываются процессы плавления, испарения и

затвердевания по мере остывания. Находится распределение скорости по веществу в конце стадии падения давления на контакте подложка – пленка до малых значений. По распределениям скорости и температуры мы определяем слой, который в будущем сформирует жидкую оболочку. Далее используем полуаналитическую модель бесконечно тонкой оболочки для подготовки начальных данных для молекулярно-динамического моделирования.

К этому кругу относится и проблема с воздействием наносекундных импульсов. На этапе 2017 года были подготовлены подходы к этой проблеме с помощью модели бесконечно тонкой оболочки. В 2018 г. решение будет окончено. Будут добавлены данные молекулярно-динамического моделирования и написана статья. Отметим важность данного направления. Многие лаборатории предпочитают для фабрикации наноструктур применять именно наносекундные лазерные системы, как более простые.

(2) Фазовые пластинки и вихревые пучки электромагнитного излучения

С помощью фокусировки и фазовых пластинок создают «закрученные» потоки ЭМ излучения. Вихревой оптический пучок создает на мишени спиральное острие, см. рис. 3. Это популярное сегодня направление исследований, по которому публикуются десятки работ в год, см. например, K. Toyoda, *Using Optical Vortex To Control the Chirality of Twisted Metal Nanostructures*, Nano Lett. (2012) v. **12**, 3645-3649. Предполагается, что в будущем такие хиральные наноструктуры позволят различать хиральность и оптическую активность молекул на наномасштабах. Можно будет влиять на химические реакции на хиральных плазмонных наноструктурах. С этими возможными приложениями связан интерес к проблеме.

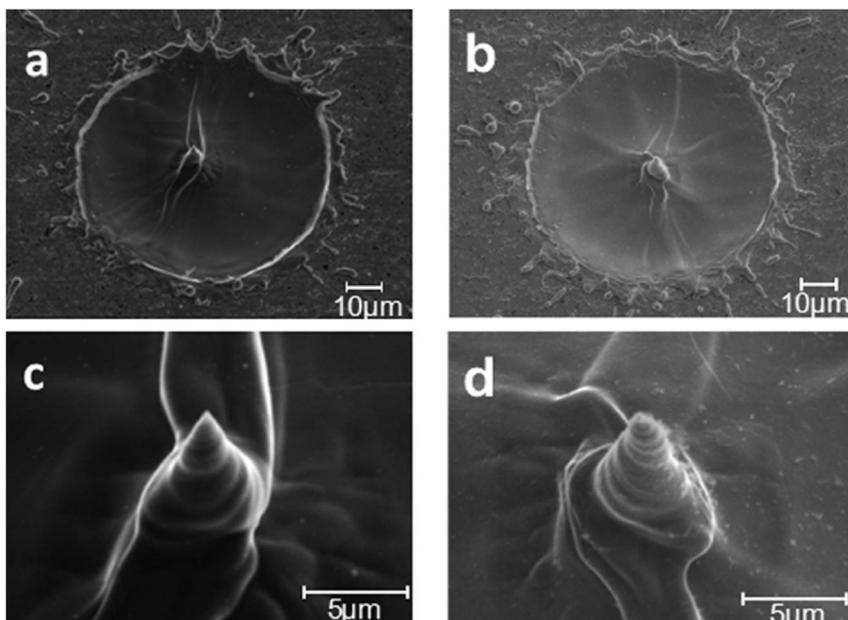


Рис. 3. Взято из работы К.

Toyoda, *Using Optical Vortex To Control the Chirality of Twisted Metal Nanostructures*, *Nano Lett.* (2012) v. 12, 3645-3649. Показано спиральное острие на поверхности объемной мишени из тантала.

Статей по проблеме много. Но все они посвящены или вопросам формирования вихревого пучка в теории и на практике, или эксперименту. Авторы подсчитывают орбитальный момент и связывают его знак с направлением закрутки - Takahashi et al., *Picosecond optical vortex pulse illumination forms a monocrystalline silicon needle*, *Scientific Reports* | 6:21738 | DOI: 10.1038/srep21738. Нет ни одной работы, в которой на базе физики взаимодействия излучения с веществом авторы хотя бы попытались проанализировать ситуацию. Наша работа по направлению ((2)) в 2018 г. будет нацелена на исправление этого положения. Будет проанализировано влияние оптических вихрей на основе пучков Лагерра-Гаусса и Эрмита-Гаусса на гидродинамику расплава вещества мишени в пятне лазерного нагрева.

((3)) Термомеханические эффекты при интерференции ЭМ волны и плазмонного поля, запись голограмм

По этому направлению многое сделано в 2017 году. За 2018 г. будет изучено влияние параметров, соответственно накоплены варианты расчетов и даны конкретные рекомендации экспериментаторам. Далее будут выполнены проверки, собраны беловые материалы и подготовлены публикации.

((4)) Мягкий рентген, косое падение, кольца Ньютона и построение интерферометрических изображений – расшифровка эксперимента

Очень важным является продолжение кооперации с японской исследовательской группой «X-ray Laser Group» проф. Кавачи и др. Ишино в Kansai Photon Science Institute, QST. Это активная группа, имеющая в своем распоряжении мягкий (13.9 нм) рентгеновский лазер (SXRL) в KPSI и имеющая доступ к мощному суперсовременному лазеру на свободных электронах XFEL SACLA. Они ставят перед нами, во-первых, вопрос об абляции (т.е. о повреждении, модификации мишеней) на SXRL и на XFEL. Во-вторых, за 2018 г. будет доведен до публикации вопрос об интерпретации и построении изображений колец Ньютона и интерферометрических полос при памп-проб освещении облученной мишени проб импульсами мягкого рентгена косого падения. Отметим, что вопрос об абляции материалов под действием облучения с длиной волны 13.9 нм тесно связан с обработкой при литографии на длине волны «оловянной лампочки» 13.5 нм.

((5)) Лазерная фрагментация капель

Будут проанализированы задачи о лазерном диспергировании капель. Эта задача связана с литографическими машинами на жестком ультрафиолете – мягком рентгене. В 2017 г. была проведена большая работа по моделированию распыления капель, см. отчет-2017. Для расчетов подготовлен многопроцессорный вариант SPH (smooth particle hydrodynamics) кода. Многопроцессорность позволяет намного увеличить число SPH-частиц, и т.о. сильно повысить точность моделирования. Первые SPH расчеты были выполнены в 2017 г. Теперь мы перейдем от прикидочных расчетов к беловым. Вместе с трехмерным осесимметричным SPH расчетом ведется 1D двухтемпературный (2T) расчет с помощью гидродинамического кода по лагранжевой координате. Во-первых, это дает нам информацию о формировании

и эволюции «треугольной» ударной волны, которая распространяется к центру сферической капли. Этот профиль при необходимости будет перенесен в SPH расчет. Во-вторых, нас интересует ситуация при подходе сходящейся ударной волны к центру и при отражении от центра. Кроме того, мы разрабатываем параметры скейлинга, чтобы на малой молекулярно-динамической системе (шарик расплава олова с радиусом 50 нм) промоделировать лазерный удар по капле с радиусом 50 мкм.

((6)) Рентгеновская и оптическая абляция рутения

В настоящее время быстро растут мощности и частота повторения рентгеновских лазеров на свободных электронах XFEL. В связи с этим разрабатываются покрытия, которые выдерживают воздействия ультракоротких интенсивных рентгеновских импульсов. Физическое описание механизмов повреждения поверхности необходимо для оценки времени жизни покрытий под действием жесткого излучения. Рутений считается подходящим материалом для таких покрытий. Наши коллеги экспериментаторы (Др. И. Махоткин и др.) из университета Твенте, Энсхеде, Голландия (группа Проф. Др. Fred Bijkerk) накопили много данных по рентгеновскому воздействию на рутений. Чтобы иметь возможность проводить сопоставление, ими были проведены серии опытов с воздействием на рутений оптическим лазером.

В 2018 г. нами будет создана физическая модель рутения и будет проведено численное моделирование воздействия рентгеновского и оптического излучений. Будет разработан межатомный потенциал рутения (Ru имеет ГПУ решетку) и выполнено молекулярно-динамическое моделирование. Результаты будут сопоставлены с опытами.

((7)) Формирование наночастиц при абляции золота в воду

Это важная тематика, по которой имеется обширный и до сих пор плохо понятый эксперимент. На этапе 2017 г. были выполнены первые расчеты (одна статья послана в печать, другая принята к

публикации). Этап 2018 г. является завершающим по данной проблеме. Будут выполнены крупномасштабные молекулярно-динамические и гидродинамические расчеты. Важно, что будут изучены случаи с более высокими значениями поглощенной энергии чем те, которые были рассмотрены в 2017 г.

((8)) Проверка двухтемпературной теплофизической модели тантала

Важнейшими параметрами двухтемпературной модели являются теплоемкость, теплопроводность и коэффициент обмена энергией между электронной и ионной подсистемами. Имеются расчетные подходы к определению этих параметров. Спрашивается, как проверить расчет в эксперименте?

В 90-е годы с помощью измерений терморелефлектанса определяли коэффициент обмена. Но эти измерения относились к слабым нагревам, ниже порога плавления. На сегодня ситуация при высоких нагревах остается неясной.

В 2018 г. с помощью DFT (Density Functional Theory) вычислений будет уточнена двухтемпературная модель тантала. Будут вычислены указанные параметры модели. Понятно, что значения параметров определяют форму волны сжатия, которая возникает под действием лазерного импульса. Эта волна распространяется из нагретого поверхностного слоя. Считаем лазерный импульс (поглощенный флюенс, длительность и вообще временная форма) фиксированным. Сравним форму волны сжатия при большом и малом значении параметра электрон-ионного обмена. При большом значении релаксация идет быстро, слой прогрева получается тонким, а давление в нем велико. При малом значении импульса слой прогрева толще, а давление в нем ниже.

Время пробега пленки волной сжатия (и закон смещения тыльной границы пленки) будет разным при разных значениях коэффициента обмена. Это открывает путь к проверке параметров.

В данном разделе плана будем проверять влияние полувалентной 4f зоны тантала при нагревах выше 30 кК на параметры и, соответственно на форму волны сжатия. Сначала выполним такие проверки в расчетах. А затем предложим данную работу экспериментаторам.

В двухтемпературном гидродинамическом расчёте будут вычислены смещение задней границы пленки и глубина откольного кратера на фронтальной поверхности. Будет выяснено, как включение/исключение 4f-вклада в электронные теплоемкость, внутреннюю энергию, электрон-фононный теплообмен сказывается на смещении границы и глубине кратера.

(9) Ультратонкие пленки молибдена

Наши коллеги из Lasercenter Munich, University of Applied Sciences собрали много уникальных данных по лазерному воздействию на пленки молибдена толщиной 10 нм. В 2018 г. нами будет создана физическая модель молибдена и проведено численное моделирование. Это позволит существенно уточнить высокотемпературные теплофизические и оптические данные по этому важному тугоплавкому металлу.

Литература

- [1] Данилов и др. *Перераспределение материала при фемтосекундной лазерной абляции тонкой серебряной пленки*, Письма ЖЭТФ (2016) т. **104**(11), с. 780
- [2] Qingfeng Li et al., *Laser-induced nano-jetting behaviors of liquid metals*, Applied Physics A (October 2017) v. **123**(11), p.718.

Ожидаемые в конце 2018 года конкретные научные результаты

(1) 3D эффекты, плавление/испарение/рекристаллизация, произвольная длительность лазерного импульса

Будет построена теория, проведены численные расчеты и получено полное описание сложных явлений, которые имеют место при лазерном воздействии на толстые пленки. В практическом плане вопрос представляет интерес в связи с лазерной печатью в случаях, когда переносу с донора на ресивер подлежат более крупные капли, чем те, которые образуются в случае тонких пленок (крупные капли нужны, например, для создания квантовых точек на ресивере). Будет полностью решен вопрос о толстых пленках при воздействиях на них со стороны прозрачных подложек (случай А). Такое направление воздействия проиллюстрировано на рис. 1, если принять, что среда «frontal medium» - это прозрачная подложка, через которую освещается фронтальная граница пленки. А «rear-side medium» - это вакуум, в сторону которого вылетает крупная капля.

Будет проведен анализ ситуации с толстой пленкой, когда воздействие оказывается с вакуумной стороны, а пленка нанесена на подложку – т.е. на рис. 1 лазер светит снизу через вакуум, а пленка держится на подложке «frontal medium» (случай В). Заранее, т.е. на момент составления отчета за 2017-й год, неясно, удастся ли получить полное описание в данном случае. Конечно, вспенивание тонкого слоя со стороны вакуума мы увидим (это воздействия с умеренной энергетикой). Но непонятно, отделится ли металл от подложки при воздействии с повышенной энергетикой, если контакт с подложкой находится на значительной глубине. Ударная волна, которая идет со стороны облученной вакуумной границы к контакту в случае В, движет вещество около контакта в сторону противоположную вакуумной границе. Если разрыв контакта и происходит, то на поздних стадиях, как протекают которые сейчас не ясно.

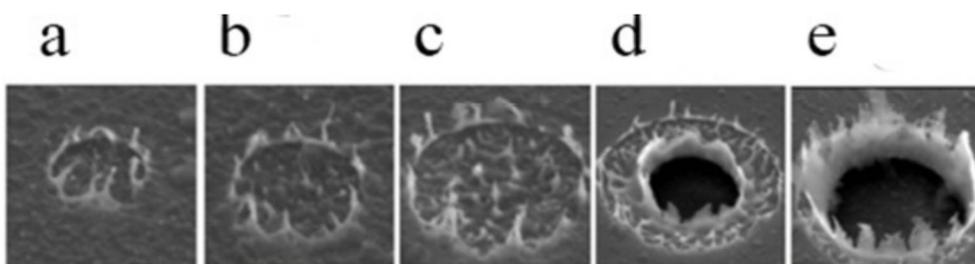


Рис. 4.

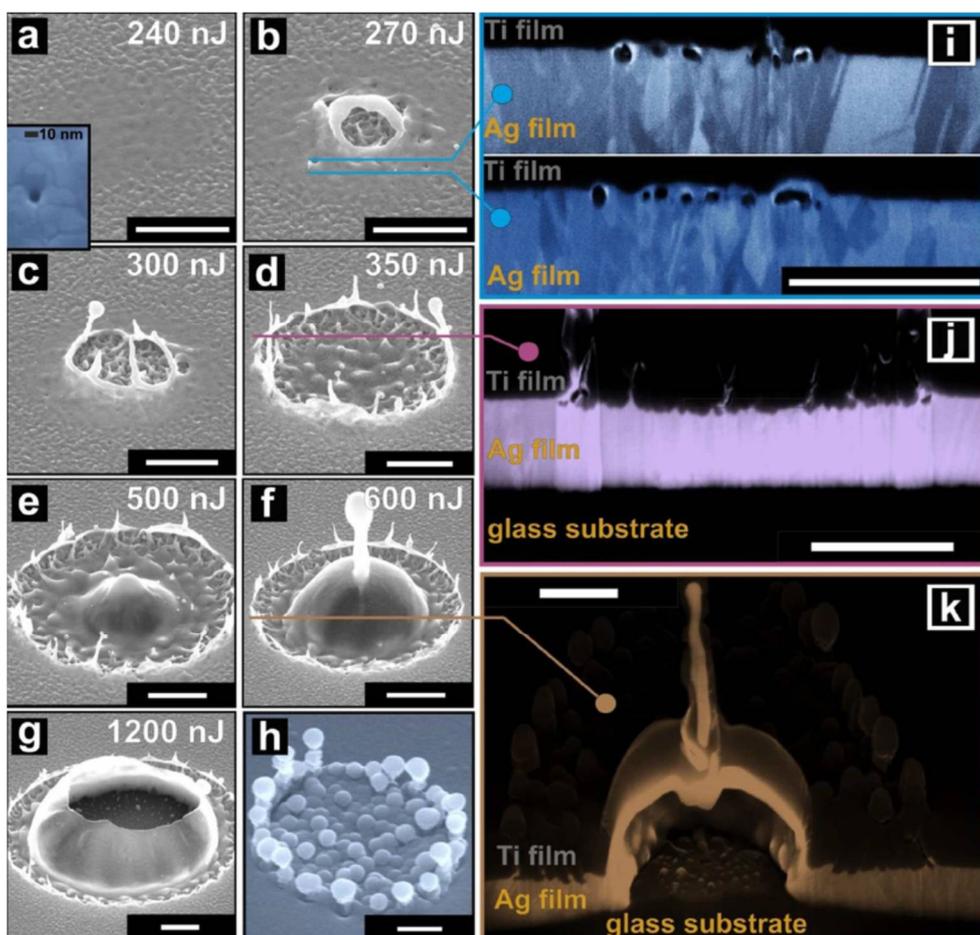


Рис. 5.

Рис. 4 взят из статьи А.А. Kuchmizhak et al., *Plasmon-mediated enhancement of Rhodamine 6G spontaneous emission on laser-spalled nanotextures*, Physics Procedia (2017) v.86, pp. 66 – 71. Рис. 5 взят из работы Kuchmizhak et al., *On-Fly Femtosecond-Laser Fabrication of Self-Organized Plasmonic Nanotextures for Chemo- and Biosensing Applications*, ACS Appl. Mater. Interfaces 2016, 8, 24946–24955. На рис. 4 и 5 пленка серебра толщиной 500 нм на подложке. Длительность импульса 200 фс (т.е. это ультракороткий импульс). Воздействие со стороны вакуума. На рис. 4 усиление вложенного флюенса происходит слева направо. При относительно малых флюенсах реализуется стандартная картина, характерная для объемных мишеней. При этом имеет место нуклеация на глубине порядка толщины слоя прогрева (порядка ста нм). В результате образуется двухфазная пена с весьма растяжимой сеткой мембран. В конце концов, растяжение приводит к разрыву мембран. Остатки мембран застывают, образуя «лохматый» рельеф на поверхности кратера и его кольцевой границы (первые три фото слева на рис. 4. При повышении флюенса возникает ситуация, промежуточная между кадрами с и d на рис. 4, в которой имеется застывший купол – пузырь. Этот купол хорошо виден на рис. 5 (e,f,g). При дальнейшем повышении флюенса (два правых кадра) на рис. 4 возникает сквозное отверстие и открывается поверхность подложки. Метка длины равна 1 мкм на всех кадрах рис. 5.

В 2018 г. будут сделаны попытки объяснить полный унос толстой пленки над подложкой (как на правых двух кадрах на рис. 4). Это нетривиальная задача. Как показывает энергетический баланс, до полного испарения всей толщины пленки 500 нм еще далеко. Да и кадры с куполом-пузырем на рис. 5 (e,f,g,k) свидетельствуют против полного испарения. На рисунках i, j, k показаны сечения пленки для соответствующих SEM кадров, см. связывающие стрелки. Они получены с помощью резки фокусированным ионным пучком (FIB, focused ion beam). Как видим, на кадрах i и j пленка прилегает к контакту с подложкой. И только на рис. 5 k пленка отслаивается от подложки. Эта картинка похожа на отслоение пленки под куполом в случае тонких пленок. Но подчеркнем, здесь пленка толстая. Поэтому аргумент с давлением на контакте, ускоряющем центр масс первоначально неподвижной пленки в сторону вакуума, здесь не проходит. Здесь возле контакта имеется импульс (количество движения вещества пленки), направленный в сторону подложки. Его несет волна сжатия, идущая от облученной границы к контакту. Конечно, подложка тормозит импульс натекающего металла, но может ли она повернуть его в обратную сторону? На этапе 2018 г. будет сделана попытка разобраться с этим вопросом.

К этому кругу относится и проблема с воздействием наносекундных импульсов. На этапе 2017 года подготовлены подходы к этой проблеме с помощью модели бесконечно тонкой оболочки. В 2018 г. решение будет окончено. Будут добавлены данные молекулярно-динамического моделирования и написана статья.

((2)) Фазовые пластинки и вихревые пучки электромагнитного излучения

С учетом фазовых переходов плавление/кристаллизация будет проанализировано гидродинамическое течение, которое создается действием малого по диаметру (1 - 10 мкм) вихревого лазерного пучка на поверхность металлической мишени.

((3)) Термомеханические эффекты при интерференции ЭМ волны и плазмонного поля, запись голограмм

В 2018 г. будет изучено влияние параметров и накоплены варианты расчетов. Работа будет вестись параллельно опытам. Далее будут выполнены проверки результатов, собраны беловые материалы и подготовлены публикации.

((4)) Мягкий рентген, косое падение, кольца Ньютона и построение интерферометрических изображений – расшифровка эксперимента

Будут доведены до совершенства программы, описывающие воздействие мягкого рентгена косого падения для построения изображений и расшифровки достаточно шумной экспериментальной информации наших коллег из Kansai Photon Science Institute, QST. Будет теоретически и численно проработан вопрос об абляции мягким рентгеном при разной длительности импульса воздействия: порядка десятка фс от XFEL SACLA и 7 пс от SXRL KPSI.

((5)) Лазерная фрагментация капель

Будут подготовлены коды для моделирования лазерного диспергирования капель. Будет проанализирована физика диспергирования.

((6)) Рентгеновская и оптическая абляция рутения

В 2018 г. нами будет создана физическая модель рутения и будет проведено численное моделирование воздействия рентгеновского и оптического излучений. Будет разработан межатомный потенциал рутения (Ru имеет ГПУ решетку) и выполнено молекулярно-динамическое моделирование. Результаты будут сопоставлены с опытами, которые проводят наши коллеги в университете г. Твенте.

((7)) Формирование наночастиц при абляции золота в воду

Будут выполнены крупномасштабные молекулярно-динамические и гидродинамические расчеты. Важно пройти возможно более протяженный участок по времени, когда ударная волна в воде уходит на далекие расстояния от контакта вода-золото, контакт останавливается и давление на нем падает до низких значений.

((8)) Проверка двухтемпературной теплофизической модели тантала

В 2018 г. с помощью DFT (Density Functional Theory) вычислений будет уточнена двухтемпературная модель тантала. Будут вычислены указанные параметры модели. Понятно, что значения параметров определяют форму волны сжатия, которая возникает под действием лазерного импульса. Эта волна распространяется из нагретого поверхностного слоя. Считаем лазерный импульс (поглощенный флюенс, длительность и вообще временная форма) фиксированным. Сравним форму волны сжатия при большом и малом значении параметра электрон-ионного обмена. При большом значении релаксация идет быстро, слой прогрева получается тонким, а давление в нем велико. При малом значении импульса слой прогрева толще, а давление в нем ниже.

Время пробега пленки волной сжатия (и закон смещения тыльной границы пленки) будет разным при разных значениях коэффициента обмена. Это открывает путь к проверке параметров.

В данном разделе плана будем проверять влияние полувалентной $4f$ зоны тантала при нагревах выше 30 кК на параметры и, соответственно на форму волны сжатия. Сначала выполним такие проверки в расчетах. А затем предложим данную работу экспериментаторам.

В двухтемпературном гидродинамическом расчёте будут вычислены смещение задней границы пленки и глубина откольного

кратера на фронтальной поверхности. Будет выяснено, как включение/исключение 4f-вклада в электронные теплоемкость, внутреннюю энергию, электрон-фононный теплообмен сказывается на смещении границы и глубине кратера.

(9) Ультратонкие пленки молибдена

Наши коллеги из Lasercenter Munich, University of Applied Sciences собрали много уникальных данных по лазерному воздействию на пленки молибдена толщиной 10 нм. В 2018 г. нами будет создана физическая модель молибдена и проведено численное моделирование. Это позволит существенно уточнить теплофизические и оптические данные по этому тугоплавкому металлу.